



PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Docket No: Q77614

Toshiyuki MIYADERA

Appln. No.: 10/667,885

Group Art Unit: 2879

Confirmation No.: 8631

Examiner: Unknown

Filed: September 23, 2003

For: MULTILAYER BARRIER FILM STRUCTURE AND ORGANIC  
ELECTROLUMINESCENT DISPLAY PANEL AND MANUFACTURING METHOD  
THEREOF

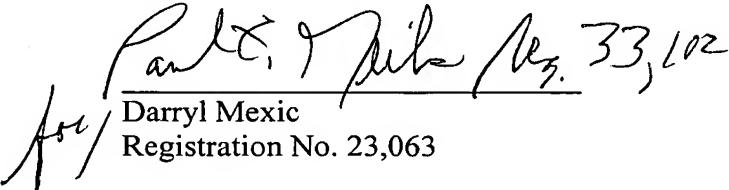
SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Submitted herewith is a certified copy of the priority document on which a claim to priority was made under 35.U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of said priority document.

Respectfully submitted,

  
Darryl Mexic

Registration No. 23,063

SUGHRUE MION, PLLC  
Telephone: (202) 293-7060  
Facsimile: (202) 293-7860

WASHINGTON OFFICE  
23373  
CUSTOMER NUMBER

Enclosures: Japan 2002-279597

Date: September 30, 2004

日本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE BEST AVAILABLE COPY

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 9月25日

出願番号

Application Number:

特願2002-279597

T.10/C]:

[JP2002-279597]

願人

Applicant(s):

バイオニア株式会社

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

2003年 6月24日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田 信一郎

出証番号 出証特2003-3049495

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application: 2002年 9月25日

出願番号

Application Number: 特願2002-279597

[ST.10/C]:

[JP2002-279597]

出願人

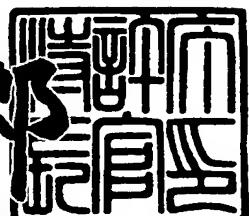
Applicant(s): パイオニア株式会社

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

2003年 6月24日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田 信一



出証番号 出証特2003-3049495

【書類名】 特許願

【整理番号】 57P0024

【提出日】 平成14年 9月25日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/06

【発明の名称】 多層バリア膜構造、有機エレクトロルミネッセンス表示パネル及び製造方法

【請求項の数】 20

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式会社 総合研究所内

【氏名】 宮寺 敏之

【特許出願人】

【識別番号】 000005016

【氏名又は名称】 パイオニア株式会社

【代理人】

【識別番号】 100079119

【弁理士】

【氏名又は名称】 藤村 元彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 016469

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9006557

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 多層バリア膜構造、有機エレクトロルミネッセンス表示パネル  
及び製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 支持基板の表面に形成されかつ、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体と、前記支持基板の表面上で前記多層体を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により前記中間膜から变成した封止領域と、を有することを特徴とする多層バリア膜構造。

【請求項2】 前記無機化合物膜は窒化酸化シリコン又は窒化シリコンからなることを特徴とする請求項1記載の多層バリア膜構造。

【請求項3】 前記中間膜は熱硬化性樹脂、ポリシラザン又はゾル・ゲル法による金属酸化物膜からなることを特徴とする請求項1又は2記載の多層バリア膜構造。

【請求項4】 前記支持基板は樹脂からなることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の多層バリア膜構造。

【請求項5】 各々が、第1及び第2表示電極並びに前記第1及び第2表示電極間に挟持かつ積層された有機化合物からなる発光層を含む有機機能層からなる1以上の有機エレクトロルミネッセンス素子と、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を担持する支持基板と、からなる有機エレクトロルミネッセンス表示パネルであって、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体を、前記無機化合物膜の1つが前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触するよう、少なくとも前記有機エレクトロルミネッセンス素子及び前記支持基板の間及び前記有機エレクトロルミネッセンス素子の周囲の前記支持基板上に配置されたこと、並びに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により前記中間膜から变成した封止領域を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項6】 加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減

少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体を、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触するように前記有機エレクトロルミネッセンス素子上の全体及び前記有機エレクトロルミネッセンス素子の周囲の前記支持基板を背面から覆うこと、並びに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により前記中間膜から変成した第2封止領域を有することを特徴とする請求項5記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項7】 加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体を、前記支持基板における、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触する表面の裏側の表面を覆うこと、並びに、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により前記中間膜から変成した第3封止領域を有することを特徴とする請求項5又は6記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項8】 前記無機化合物膜は窒化酸化シリコン又は窒化シリコンからなることを特徴とする請求項5～7のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項9】 前記中間膜は熱硬化性樹脂、ポリシラザン又はゾル・ゲル法による金属酸化物膜からなることを特徴とする請求項5～8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項10】 前記支持基板は樹脂からなることを特徴とする請求項5～9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項11】 有機エレクトロルミネッセンス素子と、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を担持する支持基板と、からなる有機エレクトロルミネッセンス表示パネルの製造方法であって、

支持基板の表面を覆うように第1無機化合物膜を成膜する第1無機工程と、  
前記第1無機化合物膜上に、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜を成膜する被覆工程と、

前記中間膜上に、第2無機化合物膜を成膜する第2無機工程と、

前記第2無機化合物膜上に、第1及び第2表示電極並びに前記第1及び第2表示電極間に挿持かつ積層された有機化合物からなる1以上の有機機能層からなる有機エレクトロルミネッセンス素子を形成する工程と、

前記有機エレクトロルミネッセンス素子以外の周囲を加熱又は輻射して、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を囲むように前記中間膜から変成した封止領域を形成する工程と、を含むことを特徴とする製造方法。

【請求項12】 前記封止領域を形成する工程は、前記加熱又は輻射としてレーザの照射によって行われることを特徴とする特徴とする請求項11記載の製造方法。

【請求項13】 前記レーザの照射によって前記支持基板は切断されることを特徴とすることを特徴とする請求項11又は12記載の製造方法。

【請求項14】 前記第1及び第2無機化合物膜は窒化酸化シリコンからなることを特徴とすることを特徴とする請求項11記載の製造方法。

【請求項15】 前記第1及び第2無機化合物膜はスパッタ法により成膜されたことを特徴とする請求項14記載の製造方法。

【請求項16】 前記中間膜はウェット成膜法により成膜されたことを特徴とする請求項14記載の製造方法。

【請求項17】 前記中間膜は熱硬化性樹脂、ポリシラザン又はゾル・ゲル法による金属酸化物膜を含むことを特徴とする請求項16記載の製造方法。

【請求項18】 前記中間膜はポリシラザン溶液を乾燥させて形成することを特徴とする請求項17記載の製造方法。

【請求項19】 前記中間膜はエポキシ樹脂を重合させて形成することを特徴とする請求項17記載の製造方法。

【請求項20】 前記中間膜は、ゾル・ゲル法による金属酸化物膜を加熱処理して形成することを特徴とする請求項17記載の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、多層バリア膜構造、有機エレクトロルミネッセンス表示パネル及び

製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

表示装置に用いられるように、複数の有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子という）が支持基板上に形成された有機エレクトロルミネッセンス表示パネル（以下、有機EL表示パネルという）が開発されている。

有機EL素子は、電流の注入によって発光するエレクトロルミネッセンスを呈する有機化合物材料からなる発光層を含む1以上の薄膜（以下、有機機能層という）を備えた発光素子である。有機EL素子は、基本的には有機機能層を陽極及び陰極で挟んだ形態で、両電極から注入された電子と正孔が再結合時に形成される励起子が励起状態から基底状態に戻り光を生じさせる。

【0003】

この有機EL素子は、大気に晒されると、水分、酸素などの分子の影響を受けて特性劣化が顕著であり、輝度、色彩などの発光特性が低下する問題がある。これを防止するために、無機化合物膜を有機EL素子上に成膜して浸透する水分などを遮断する方法が提案されている。さらに、WO00/36665公報に開示されるように、主にガスバリア性を担う無機化合物膜と無機化合物膜間に挿入された樹脂膜との交互積層からなるいわゆる多層ガスバリア膜が提案されている。膜のガスバリア性は酸素及び水分が透過する障壁となる性質をいい、酸素及び水などの分子の透過する数が多いときガスバリア性が低く、その数が少ないとガスバリア性が高い。多層ガスバリア膜のガスバリア性に関しては、各膜自身のガスバリア性と共にピンホールなどの欠陥密度が大きく関与している。無機化合物膜と樹脂膜のガスバリア性を比較すると、一般的に無機化合物膜のほうが高いガスバリア性を有している。しかしながら、無機化合物膜は真空蒸着、スパッタなどのドライ成膜法で成膜されるため、ピンホールなどの局部的欠陥を生じやすい。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

無機化合物膜と樹脂膜の多層ガスバリア膜は、無機化合物膜の単一層のピンホ

ールなどの影響を軽減できる。一方、多層ガスバリア膜においても、全てドライ成膜法で成膜すると一層目に存在する欠陥が次の層にも影響してしまうので、ピンホールなどの欠陥密度を軽減することが難しい。また、多層ガスバリア膜の端面においては、ガスバリア性の低い樹脂層が露出してしまうため、樹脂層端面部分を通して水分などが侵入することになり、多層化のメリットが十分に生かされない。

## 【0005】

多層ガスバリア膜の樹脂層端面部分をあらかじめ無機化合物膜で覆う方法が考えられるが、色々なサイズの無機化合物膜に応じて樹脂層の面積を変更した所定マスクを用意するなど作製仕様を変更しなければならず、製造の観点からは非効率的な方法である。

本発明の解決しようとする課題には、ガスバリア性が高い多層バリア膜構造、水分などによる発光特性が劣化しにくい有機EL表示パネル及び製造方法を提供することが一例として挙げられる。

## 【0006】

## 【課題を解決するための手段】

請求項1記載の多層バリア膜構造は、支持基板の表面に形成されかつ、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体と、前記支持基板の表面上で前記多層体を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により前記中間膜から変成した封止領域と、を有することを特徴とする。

## 【0007】

請求項5記載の有機EL表示パネルは、各々が、第1及び第2表示電極並びに前記第1及び第2表示電極間に挟持かつ積層された有機化合物からなる発光層を含む有機機能層からなる1以上の有機EL素子と、前記有機EL素子を担持する支持基板と、からなる有機EL表示パネルであって、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体を、前記無機化合物膜の1つが前記有機EL素子に接触するように、少なくとも前記有機EL素子及び前記支持基板の間及び前記有機

EL素子の周囲の前記支持基板上に配置されたこと、並びに、前記有機EL素子を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により前記中間膜から变成した封止領域を有することを特徴とする。

## 【0008】

請求項11記載の有機EL表示パネル製造方法は、有機EL素子と、前記有機EL素子を担持する支持基板と、からなる有機EL表示パネルの製造方法であつて、

支持基板の表面を覆うように第1無機化合物膜を成膜する第1無機工程と、前記第1無機化合物膜上に、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜を成膜する被覆工程と、

前記中間膜上に、第2無機化合物膜を成膜する第2無機工程と、前記第2無機化合物膜上に、第1及び第2表示電極並びに前記第1及び第2表示電極間に挟持かつ積層された有機化合物からなる1以上の有機機能層からなる有機EL素子を形成する工程と、

前記有機EL素子以外の周囲を加熱又は輻射して、前記有機EL素子を囲むように前記中間膜から变成した封止領域を形成する工程と、を含むことを特徴とする。

## 【0009】

## 【発明の実施の形態】

以下に、本発明による実施の形態例を図面を参照しつつ説明する。

図1は、多層バリア膜構造を有している実施形態の有機EL表示パネルを示す。

有機EL素子Dにおいては、例えば、透明な支持基板10の多層体11上にインジウム錫酸化物(ITO)からなる透明電極(第1表示電極)13が蒸着又はスパッタ法などにて成膜される。その上に、例えば、銅フタロシアニンからなる正孔注入層、TPD(トリフェニルアミン誘導体)からなる正孔輸送層、Alq3(アルミキレート錯体)からなる発光層、Li<sub>2</sub>O(酸化リチウム)からなる電子注入層が順次、蒸着法により成膜され、これらが有機機能層14を構成する。さらに、この電子注入層上に蒸着法などによって、Alからなる金属電極(第

2表示電極) 15が透明電極13の電極パターンと対向するように成膜される。ここでは有機EL素子の構造の一例を示しているのみで、有機EL素子はこの例に限定されること無く、いかなる構造、材料の有機EL素子も用いられ得る。

## 【0010】

支持基板10の表面に形成されている多層体11は、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜11B、11Dとこれらをそれぞれ挟持して積層された無機化合物膜11A、11C、11Eとからなる。多層体11には、加熱又は輻射により中間膜11Bから変成した封止領域12が支持基板の表面上で多層体を囲むように設けられている。そして、有機EL表示パネルは、かかる多層体11が形成された支持基板10と、最表面の無機化合物膜11E上に順に積層された、第1表示電極13(透明電極の陽極)、有機化合物からなる発光層を含む1以上の有機機能層14、及び第2表示電極15(金属電極の陰極)、から構成される。有機EL素子は、封止膜16でその第2表示電極15の背面から覆われている。また、第1無機化合物膜11Aの直下の支持基板10間に、付着性の向上のために有機材料膜を設けることもできる。

## 【0011】

無機化合物膜11A、11C、11Eは例えばスパッタ法などのドライ成膜法により成膜された窒化酸化シリコン又は酸化シリコンなどの無機化合物からなる。無機化合物膜11A、11C、11Eの無機化合物材料としては、光取り出し側に設けられる場合は、光透過性の高い窒化酸化シリコンの無機化合物膜が好ましい。光取り出し側の反対側に設けられる場合は窒化シリコンなどの無機化合物も用いられ得る。

## 【0012】

中間膜11B、11Dは例えばゾル・ゲル法などのウェット成膜法により成膜された金属酸化物などの無機化合物からなる。また、中間膜11B、11Dはウェット成膜法により成膜されたエポキシ樹脂、シリコン樹脂などの熱硬化性樹脂からも成膜でき、熱硬化性樹脂のほかに中間膜は材料としては、紫外線(UV)硬化性樹脂も適用できる。

## 【0013】

支持基板10材料としては、ポリエチレンテレフタート、ポリエチレン-2,6-ナフタレート、ポリカーボネート、ポリサルファン、ポリエーテルサルファン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェノキシエーテル、ポリアリレート、フッ素樹脂、ポリプロピレン、ポリエチレンナフタレート、ポリオレフィンなどの有機化合物が適用できる。さらに、支持基板材料としては、ガラスなどの無機化合物が適用できる。

#### 【0014】

なお、支持基板10と第1無機化合物膜11Aの密着性などを向上させるために有機化合物からなるバッファ層を設けることが可能である。また、多層体11は、支持基板及びの有機EL素子間の表面、有機EL素子周囲の支持基板表面を覆うが、支持基板への侵入を防止するため有機EL素子に接触する表面の裏側の表面を覆うように成膜できる。

#### 【0015】

つぎに、一例として、無機化合物膜(SiON)と熱硬化性樹脂(エポキシ樹脂)との多層体を用いた有機EL表示パネルの製造方法を説明する。

支持基板は、コストの観点から所定の幅を有した連続プラスチックシートで製造される。この場合、有機EL表示パネルの製造は、連続プラスチックシート上に複数の有機EL素子からなる発光領域の複数を形成した後、最終段階で、それぞれが発光領域を有する有機EL表示パネルごとに切断することによりなされる。この方法はいわゆる多面取り製造といわれる。

図2に示すように、支持基板10の表面を覆うように窒化酸化シリコン(SiON)の第1無機化合物膜11AをRFスパッタ法により成膜する。

#### 【0016】

次に図3に示すように、第1無機化合物膜11A上に、エポキシ基を有するモノマ、オリゴマと有機アミン類などの硬化剤とからなるエポキシ樹脂前駆体を塗布し、所定温度で重合せしめ、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜11Bとしてのエポキシ樹脂の膜を成膜する。中間膜11Bはウエット成膜法により成膜され、例えば、エポキシ樹脂前駆体の液体槽にシートを浸漬させる方法や、スピンドルコート、ブレードコート、ロールコート、バ

ーコート、スプレイ塗布により行われる。

【0017】

次に図4に示すように、中間膜11B上に、窒化酸化シリコンの第2無機化合物膜11CをRFスパッタ法により成膜する。

次に、第2無機化合物膜11C上に、図3及び図4に示す工程と同様に処理し、エポキシ樹脂の中間膜11D、その上に、第3無機化合物膜11Eを、図5に示すように、成膜する。

【0018】

その後、第3無機化合物膜11E表面上に第1表示電極13（透明電極の陽極）、所定の有機機能層14、第2表示電極15（金属電極の陰極）、及びこれらを覆う封止膜16を順に積層して、図6に示すように、実施形態の複数の有機EL素子Dを作製する。連続プラスチックシート（支持基板）上に複数の有機EL素子からなる発光領域の複数を形成するが、図6では、1つの有機EL素子Dを代表して示している。

【0019】

次に図7に示すように、有機EL素子の群以外の周囲を、例えばYAGレーザ、CO<sub>2</sub>レーザの照射によって、連続シートからの切断処理を行う。このレーザ照射処理により、エポキシ樹脂の重合がさらに進み、有機EL素子群（発光領域）を囲むように中間膜から変成した緻密な封止領域12が形成され、同時に、レーザ照射によって、連続プラスチックシートが所望サイズの有機EL表示パネルに切断される。レーザ照射熱によりエポキシ樹脂の封止領域12の硬化が促進され、多層体11の端面のガスバリア性が向上する。この際、加熱は局所的であるため基板全体が変形する支障がなく、上記処理が可能である。この結果、多面取り製造方法によっても、多層体の端面が外気に露出しても、無機化合物膜を多層化したことによるガスバリア性を改善する効果が得られる。

【0020】

なお、ここでは、レーザの照射によって支持基板が切断されるが、この代わりに、シートを切断すべき線を含む照射範囲に、ハロゲンランプなどで光線を照射して封止領域12を形成したのち、別工程でシートの切断処理を行うこともでき

る。

このように、実施形態例に多層体中において、ガスバリア性を主に担う膜には、ドライ成膜法による無機化合物膜を用い、多層化における欠陥密度を低減させるために無機化合物膜間に挿入する層材料には、ウエット成膜法が可能で加熱又は輻射によってガスバリア性が向上するような材料を用いる。

#### 【0021】

他の実施形態においては、次のa)及びb)の多層体を用いることができる。

a) : 無機化合物膜 (SiON) とペルヒドロポリシラザンとの多層体：

図3に示す中間膜11Bとしてのエポキシ樹脂の膜を成膜する工程の代わりに、例えば、キシレン、ジブチルエーテルなどを溶媒としたペルヒドロポリシラザン溶液を塗布し、所定温度で乾燥せしめ、乾燥塗膜を成膜する。これもウエット成膜法により成膜され、例えば、溶液の液体槽にシートを浸漬させる方法や、スピンドルコート、ブレードコート、ナイフコート、バーコート、ロールコート、スプレイ塗布により行われる。

#### 【0022】

SiONとポリシラザン塗膜との多層体上に有機EL素子Dを作製した後、連続プラスチックシートをレーザ照射にて所望のパネルサイズに切断する。レーザの熱によりポリシラザン膜が緻密なシリカに変化し、すなわち加熱又は輻射により中間膜から変成した封止領域12が形成され、多層体端面部分のガスバリア性が向上する。この際、ペルヒドロポリシラザンのような塗布可能な無機高分子材料を無機化合物膜上に形成し、プラスチック支持基板全体の加熱によってガスバリア性を確保しようとした場合に比べ、基板を部分的に加熱するので、基板全体の溶融変形を生じる問題がない。ポリシラザン膜は大気中で焼成すると、約450°Cで緻密なアモルファスシリカへ転化し、また、不活性ガスや真空中で焼成するとアモルファスSiNへ転化して、ポリシラザン膜から変成した封止領域が得られる。さらにまた、ピリジンなどの触媒下で水蒸気中で加熱又は輻射の処理すると、100°C以下で緻密なアモルファスシリカの封止領域が得られる。ポリシラザンの他に、ポリシロキサン、ポリカルボシランなど有機ケイ素系高分子材料も使用できる。

## 【0023】

b) : 無機化合物膜 (SiON) とゾル・ゲル法を用いた金属酸化物 (SiO<sub>2</sub>) の薄膜との多層体 :

ゾル・ゲル法では、金属アルコキシドなどの金属有機化合物や金属塩を加水分解して得られる酸化物前駆体粒子を含む例えはアルコールのコロイド溶液 (ゾル) を調製し、次いでそれを支持基板に塗布し、乾燥させて流動性を消失せしめた薄膜 (ゲル) とした後、熱処理によってガラス又はセラミック薄膜となる。支持基板をゾルで塗布する方法には、ゾルを噴霧するスプレー法、基板をゾルに浸漬し、次いで引き上げる浸漬法などがある。大面積の基板全体を均一に塗布には浸漬法が適している。また、金属アルコキシドの金属種としては Si の他に、Na、Ba、Cu、Al、Ti、Ge、V、W、Y が用いられる。

## 【0024】

ゾル・ゲル法を含め無機化合物膜のウェット成膜法による塗布膜の作製方法の特長を列挙する。

(a) ゲル状態を経るので、多孔性の膜となる。焼成すれば、多孔性は消失して緻密な膜になる。

(b) 原料を蒸留や再結晶により容易に精製できるので高純度の塗布膜が得られる。

## 【0025】

(c) 原料を粘度の低い液体状態で混合するので原子又は分子レベルでの均質化が可能である。これは複合酸化物の調製に特に有利であり化学量論性の高い化合物塗布膜が得られる。

(d) 焼成温度が通常のセラミックスの焼結に較べて数百～千℃も低い。

(e) 装置が簡便で大面積のものでも塗布が可能である。また、両面同時塗布又は部分塗布が可能である。

## 【0026】

ゾル・ゲル法では、図3に示す中間膜 11B としてのエポキシ樹脂の膜を成膜する工程の代わりに、例えは、Si (OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>) の塩酸エタノール溶液を塗布し、所定温度で乾燥せしめ、ゲル乾燥塗膜を成膜する。これもウェット成膜法によ

り成膜され、例えば、溶液の液体槽にシートを浸漬させる方法や、スプレイ塗布により行われる。

【0027】

SiONとゲル乾燥塗膜との多層体上有機EL素子Dを作製した後、連続プラスチックシートをレーザ照射にて所望のパネルサイズに切断する。レーザの熱によりゲル乾燥塗膜が緻密なシリカに変化し、すなわち加熱又は輻射により中間膜から変成した封止領域12が形成され、多層体端面部分のガスバリア性が向上する。これをレーザ照射にて所望のパネルサイズに切断するとともに、加熱又は輻射により中間膜から変成した封止領域を形成する。レーザの加熱によりSiO<sub>2</sub>層端部のガスバリア性が向上する。この際、加熱は局所的であるため基板全体が変形する支障なく、上記処理が可能である。

【0028】

以上のように、無機化合物膜と加熱又は輻射によってガスバリア性が向上しかつ塗布可能な中間膜との交互積層によって多層体を構成しているため、各層の局所的欠陥（ピンホール）に基づく酸素及び水分の透過防止効果の損失を軽減できる。また、レーザ切断により所望のパネルサイズに切断した際の加熱又は輻射によって露出する中間膜の端面部分を封止領域へ変化させるだけでなく、切断後の素子の自然放置による外部からの加熱又は輻射によって中間膜本体をも、高いガスバリア性の封止領域へと変化させることができるので、実用的な形態でのガスバリア性を確保できる。

【0029】

他の実施形態においては、必要に応じて、無機化合物膜及び中間膜の積層を3層以上に重ね合わせることもできる。例えば、図8に示すように、支持基板10上に、無機化合物膜11A、中間膜11B、無機化合物膜11C、中間膜11D、無機化合物膜11E・・・無機化合物膜11X、中間膜11Y、無機化合物膜11Zを上記同様に交互に成膜して、その上に有機EL素子Dを作製できる。各中間膜はパターニングする必要がなく無機化合物膜全面に形成され、中間膜の表示領域以外の周囲が局所的に加熱処理されて中間膜が変成し封止領域となるので、中間膜の縁部が水蒸気などの透過性の低い緻密な膜構造となる。よって、当該

縁部からの水分などの侵入が阻止される。

## 【0030】

本実施形態においては、無機化合物膜を複数重ね合わせ、その無機化合物膜間に中間膜を配し、さらに、少なくとも素子の有機機能層に近い側の中間膜の縁部を变成封止領域とすることによって、無機化合物膜に欠陥が存在する場合にも、その水分などの進入経路をほぼ完全に遮断することができ、有機EL素子の信頼性を大きく向上させることができる。

## 【0031】

図9は他の実施形態、複数の有機EL素子を備えた有機EL表示パネルの部分拡大背面図である。有機EL表示パネルは、多層体で被覆された支持基板10上にマトリクス状に配置された複数の有機EL素子の画素配列を備えている。透明電極層を含む行電極13（陽極の第1表示電極）と、有機機能層と、該行電極に交差する金属電極層を含む列電極15（第2表示電極）と、の交点に有機EL素子が形成されている。行電極は、各々が帯状に形成されるとともに、所定の間隔をおいて互いに平行となるように配列されており、列電極も同様である。このように、マトリクス表示タイプの表示パネルは、複数の行と列の電極の交差点に形成された複数の有機EL素子の発光画素からなる画像表示配列を有している。第1表示電極13は、島状の透明電極を水平方向に電気的に接続する金属バスラインから構成できる。有機EL表示パネルは支持基板10の多層体上の有機EL素子の間に設けられた複数の隔壁7を備えることもできる。第2表示電極15及び隔壁7の上には封止膜16が形成されている。有機機能層材料を選択して適宜積層して各々が赤R、緑G及び青Bの発光部を構成することもできる。

## 【0032】

さらなる他の実施形態の有機EL表示パネルにおいては、複数の有機EL素子を背面から覆う封止膜として、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体を用いることができる。すなわち、図10に示すように、有機EL素子Dに接触するように有機EL素子上の全体及び有機EL素子の周囲の支持基板10を背面から覆うように、上記と同様に積層された無機化合物膜16A、中間膜16

B、無機化合物膜16C、中間膜16Dからなる多層体16aを形成する。そして、有機EL素子を囲むように、レーザなどの加熱又は輻射により、中間膜から変成した第2封止領域12aを第1封止領域12と同時に形成する。第1及び第2封止領域12、12aによって、切断縁部からの水分などの侵入が防止できる。

【0033】

また、さらなる他の実施形態の有機EL表示パネルにおいては、図10に示す多層体16aに加えて、図11に示すように、支持基板11における有機EL素子に接触する表面の裏側の表面を覆うように上記と同様に積層された無機化合物膜17A、中間膜17B、無機化合物膜17C、中間膜17D、無機化合物膜17Eからなる多層体17を形成できる。そして、有機EL素子を囲むように、レーザなどの加熱又は輻射により、中間膜から変成した第3封止領域12cを第1及び第2封止領域12、12aと同時に形成する。第1、第2及び第3封止領域12、12a、12cによって、切断縁部からの水分などの侵入が防止できる。

【0034】

上述した例においては、多層体における無機化合物膜の製法として、スパッタ法を用いたが、これに限られることはなく、プラズマCVD (Chemical Vapor Deposition) 法、真空蒸着法などの気相成長法も適用可能である。

さらに上述した図9の実施形態においては、透明支持基板10上の複数の透明電極13と金属電極15との交差する部分の有機機能層14すなわち発光部からなる単純マトリクス表示タイプの有機EL表示パネルを説明したが、本実施形態はアクティブマトリクス表示タイプのパネルの基板にも多層体は応用できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明による実施形態の有機EL素子の概略断面図。

【図2】

本発明による実施形態の有機EL表示パネル製造工程における基板の概略断面図。

【図3】

本発明による実施形態の有機EL表示パネル製造工程における基板の概略断面図。

【図4】

本発明による実施形態の有機EL表示パネル製造工程における基板の概略断面図。

【図5】

本発明による実施形態の有機EL表示パネル製造工程における基板の概略断面図。

【図6】

本発明による実施形態の有機EL表示パネル製造工程における基板の概略断面図。

【図7】

本発明による実施形態の有機EL表示パネル製造工程における基板の概略断面図。

【図8】

本発明による他の実施形態の有機EL素子の概略断面図。

【図9】

本発明による他の実施形態の、複数の有機EL素子を備えた有機EL表示パネルの部分拡大背面図。

【図10】

本発明による他の実施形態の有機EL素子の概略断面図。

【図11】

本発明による他の実施形態の有機EL素子の概略断面図。

【符号の説明】

10 支持基板

11 多層体

12 封止領域

13 第1表示電極（透明電極の陽極）

14 有機機能層（発光層）

15 第2表示電極（金属電極の陰極）

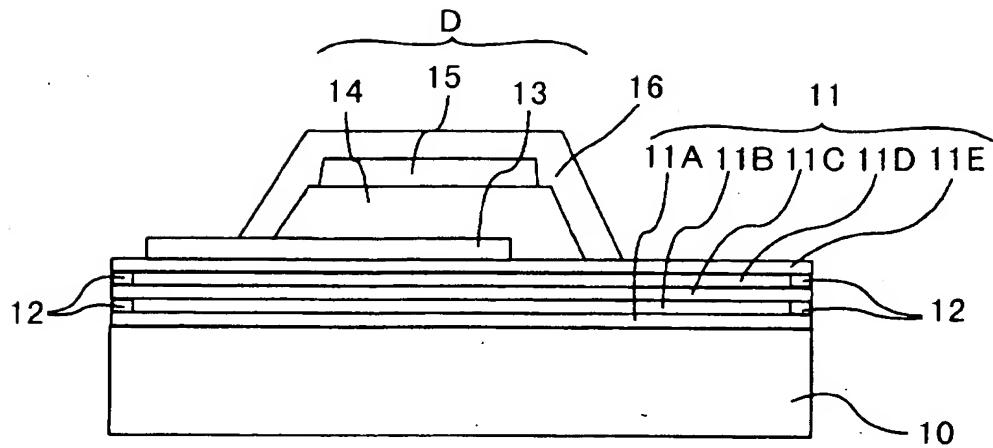
16 封止膜

11A、11C、11E 無機化合物膜

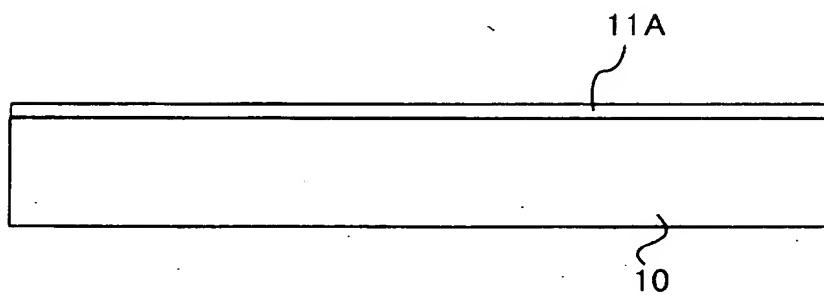
11B、11D 中間膜

【書類名】 図面

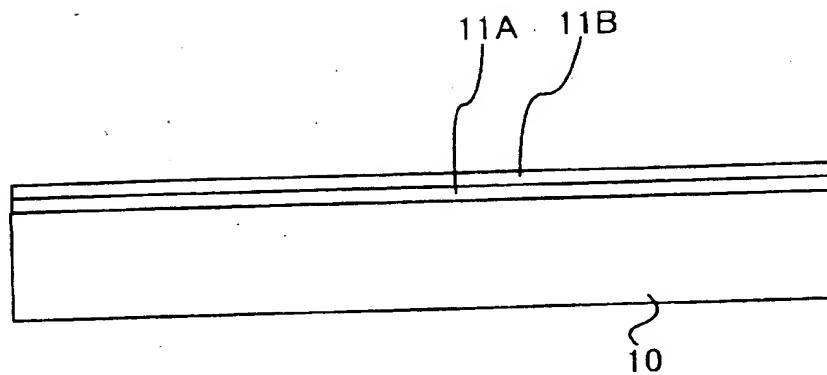
【図1】



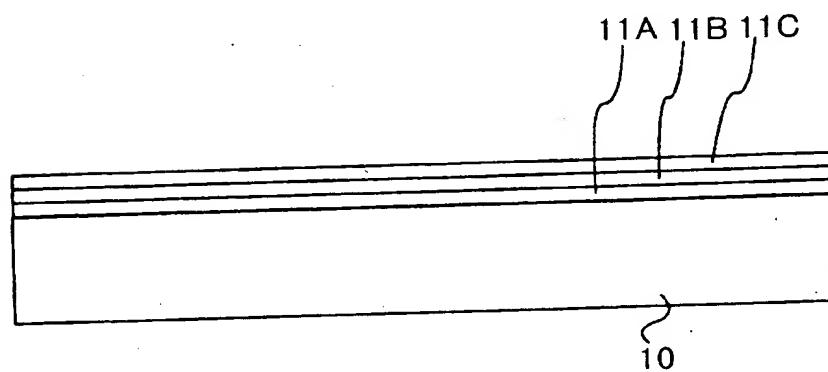
【図2】



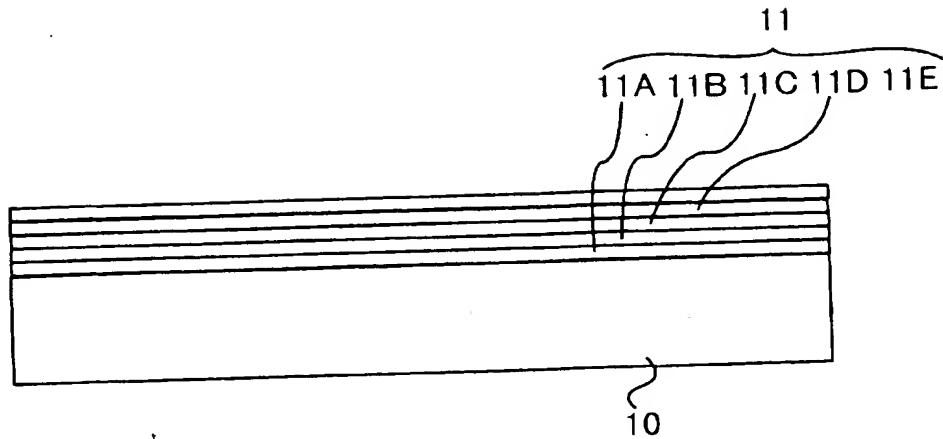
【図3】



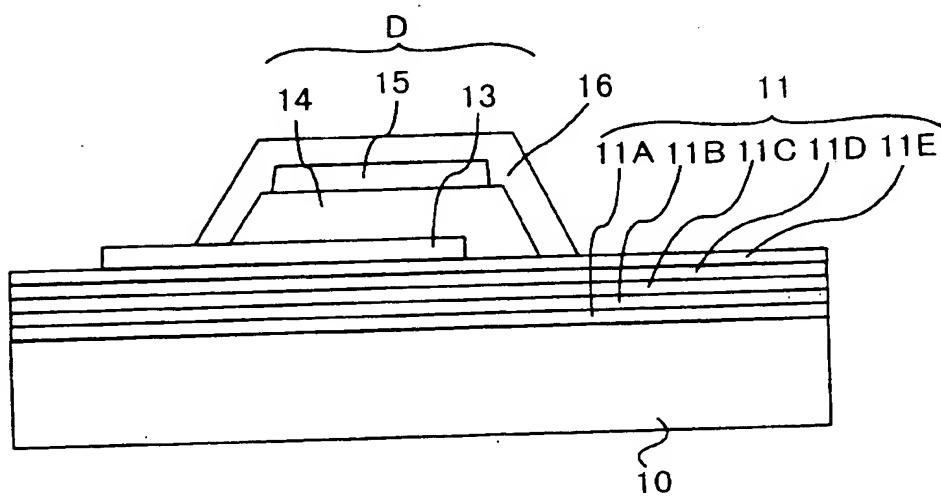
【図4】



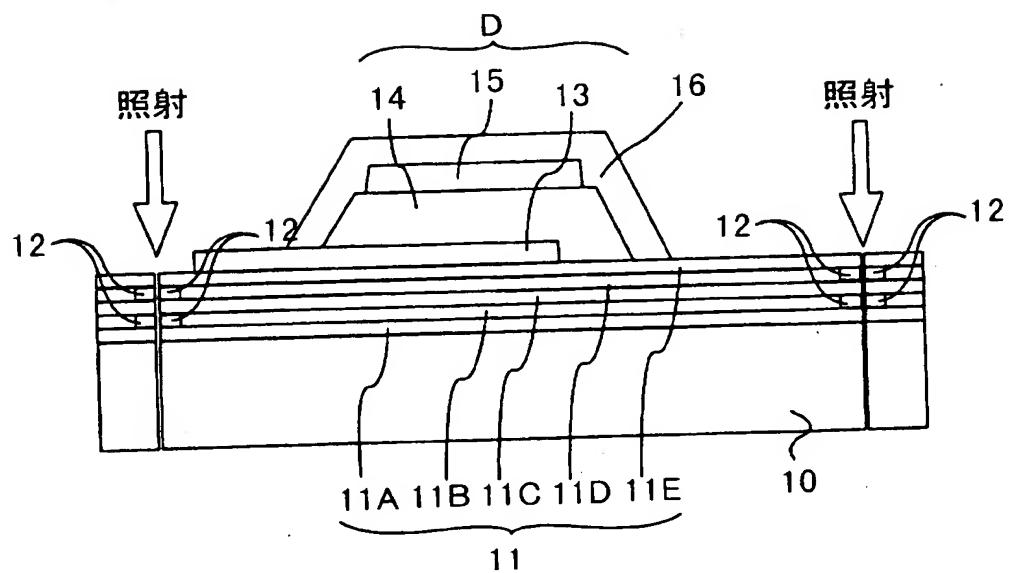
【図5】



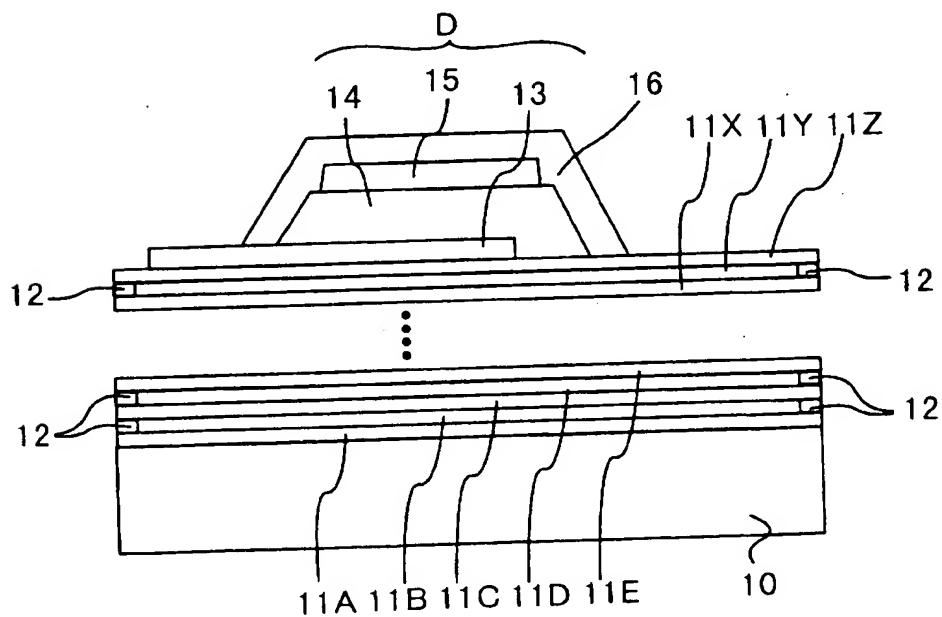
【図6】



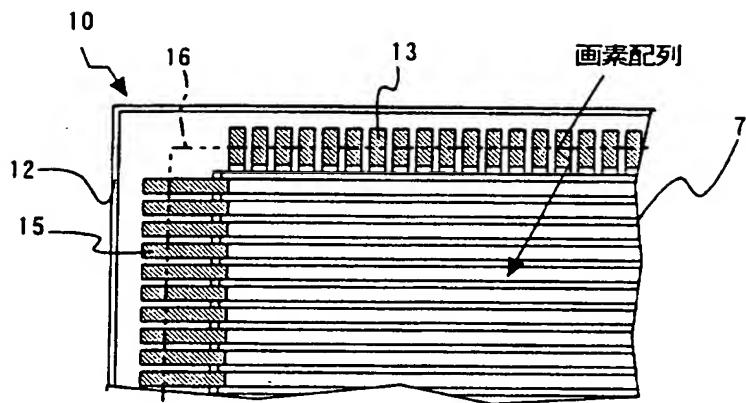
【図7】



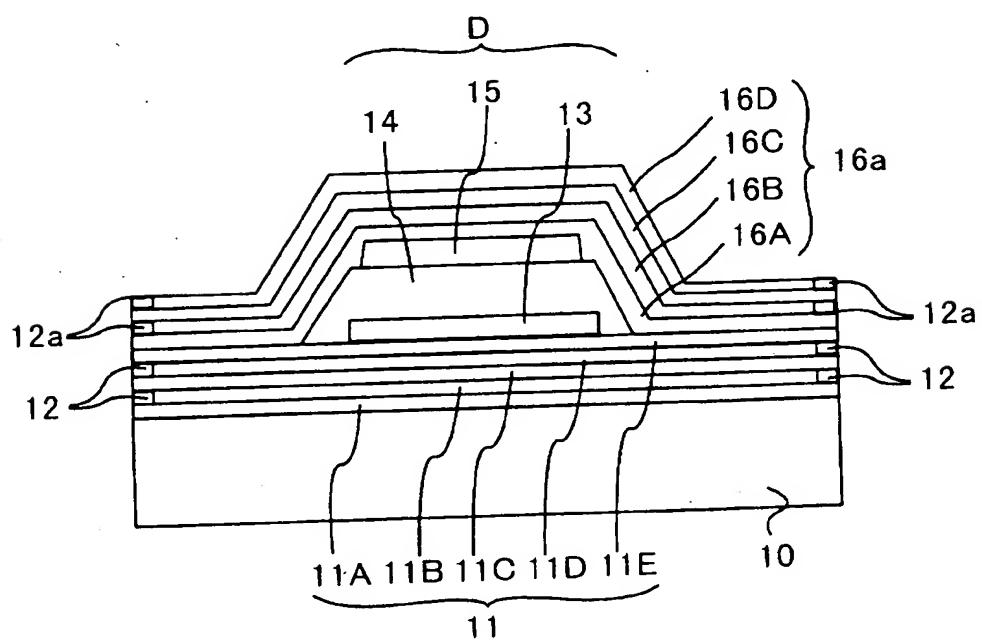
【図8】



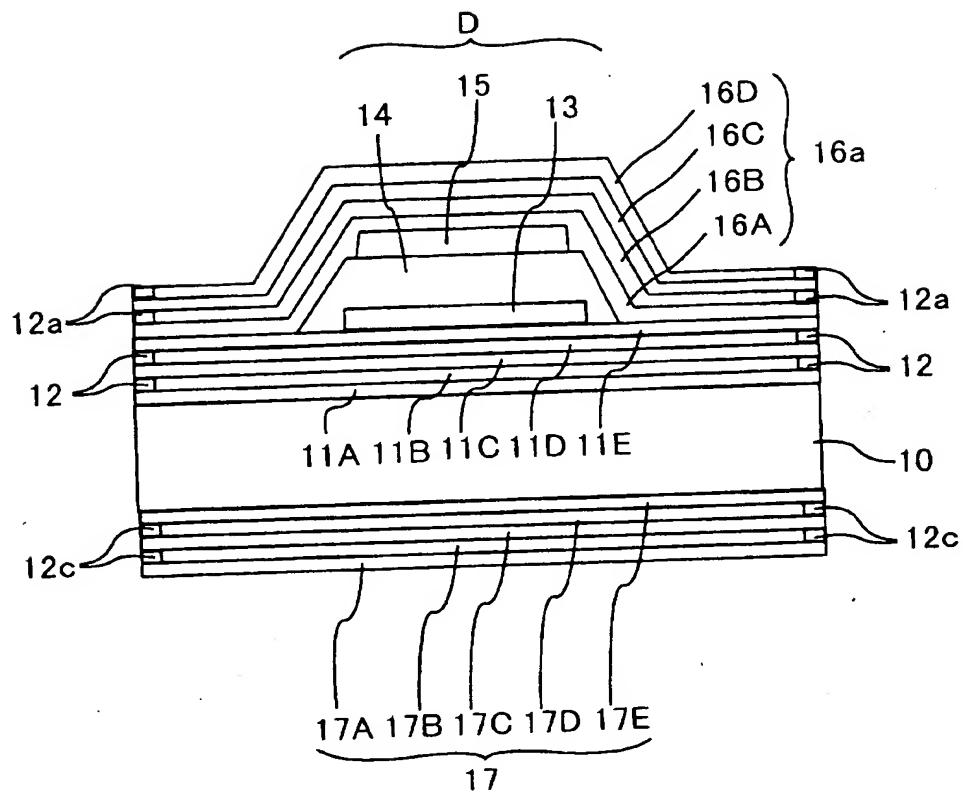
【図9】



【図10】



【図11】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ガスバリア性が高い多層バリア膜構造、有機EL表示パネル及び製造方法を提供する。

【解決手段】 有機EL表示パネルの多層バリア膜構造は、支持基板の表面に形成されかつ、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜とこれを挟持して積層された無機化合物膜とからなる多層体と、支持基板の表面上で多層体を囲むように設けられかつ加熱又は輻射により中間膜から变成した封止領域と、を有する。有機EL素子とこれを担持する支持基板とからなる有機EL表示パネルの製造方法において、支持基板の表面を覆うように第1無機化合物膜を成膜し、第1無機化合物膜上に、加熱又は輻射により酸素及び水などの分子の透過する数が減少する中間膜を成膜し、中間膜上に、第2無機化合物膜を成膜し、第2無機化合物膜上に、第1及び第2表示電極並びに第1及び第2表示電極間に挟持かつ積層された有機化合物からなる1以上の有機機能層からなる有機EL素子を形成し、有機EL素子以外の周囲を加熱又は輻射して、有機EL素子を囲むように中間膜から变成した封止領域を形成する。

【選択図】 図1

出願人履歴情報

識別番号 [000005016]

1. 変更年月日 1990年 8月31日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都目黒区目黒1丁目4番1号

氏 名 バイオニア株式会社